

10/509612
PCT/JPO3/04210 #2
Rec'd PCT/PTO 30 SEP 2004
07.05.03

日 本 国 特 許 庁

JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2002年 4月 2日

出 願 番 号

Application Number:

特願2002-100125

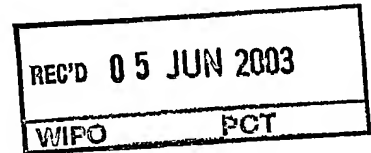
[ST.10/C]:

[JP 2002-100125]

出 願 人

Applicant(s):

旭化成株式会社



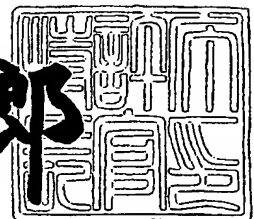
PRIORITY
DOCUMENT

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2003年 4月22日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2003-3029517

BEST AVAILABLE COPY

【書類名】 特許願

【整理番号】 X14-00442

【提出日】 平成14年 4月 2日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 C08L 77/00
C08L 71/12

【発明者】

 【住所又は居所】 千葉県袖ヶ浦市中袖5番地1 旭化成株式会社内

 【氏名】 三好 貴章

【発明者】

 【住所又は居所】 神奈川県川崎市川崎区夜光1丁目3番1号 旭化成株式会社内

 【氏名】 片山 茂樹

【特許出願人】

 【識別番号】 000000033

 【氏名又は名称】 旭化成株式会社

 【代表者】 山本 一元

【手数料の表示】

 【予納台帳番号】 011187

 【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

 【物件名】 明細書 1

 【物件名】 図面 1

 【物件名】 要約書 1

【プルーフの可否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 樹脂組成物及び成形体

【特許請求の範囲】

【請求項1】 (A) J I S K 6 8 1 0 で測定した相対粘度が3. 0 以下のポリアミド5 0 ～9 0 重量部、(B) 還元粘度が0. 5 0 以下のポリフェニレンエーテル5 0 ～1 0 重量部の合計1 0 0 重量部に対して、(C) 少なくとも1 個の芳香族ビニル化合物を主体とする重合体ブロックと、少なくとも1 個の共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロックを有し数平均分子量が1 7 0, 0 0 0 以上である水素添加されたブロック共重合体を1 ～2 0 重量部含み、更に (B) 成分と (C) 成分の合計量に対する (C) 成分の割合が0. 1 0 以上0. 3 0 未満である事を特徴とする樹脂組成物。

【請求項2】 (C) 成分が少なくとも2 個の芳香族ビニル化合物を主体とする重合体ブロックと、少なくとも1 個の共役ジエン化合物を主体とする水素添加されたブロック共重合体である請求項1 記載の樹脂組成物。

【請求項3】 (C) 成分の芳香族ビニル化合物を主体とする一つの重合体ブロックの数平均分子量が3 0, 0 0 0 以上である請求項1 又は2 のいずれかに記載の樹脂組成物。

【請求項4】 (C) 成分が、パラフィンの主成分とするオイルをあらかじめ配合した水素添加されたブロック共重合体である請求項1 ～3 のいずれかに記載の樹脂組成物。

【請求項5】 (A) ～ (C) 成分の合計量に対し、(D 1) 成分としての遷移金属を1 0 p p m 以上2 0 0 p p m 未満、(D 2) 成分としてのハロゲンを5 0 0 p p m 以上1 5 0 0 p p m 未満の量で含有する請求項1 記載の樹脂組成物。

【請求項6】 (D 1) 成分の含有量が1 0 p p m 以上1 0 0 p p m 未満であり、(D 2) 成分の含有量が7 0 0 p p m 以上1 2 0 0 p p m 未満の量で含有する請求項1 に記載の樹脂組成物。

【請求項7】 (A) 成分のポリアミドの末端アミノ基濃度が3 5 ミリ当量 / k g 以下である請求項1 記載の樹脂組成物。

【請求項 8】 (A) 成分がポリアミド 6 を含むポリアミド混合物であり、ポリアミド 6 の量比が使用するすべてのポリアミドに対して 1 5 重量%未満である請求項 1 記載の樹脂組成物。

【請求項 9】 (D 1) 成分及び (D 2) 成分が、(D 1) 成分を 5 0 0 p p m 以上、(D 2) 成分を 1 5, 0 0 0 p p m 以上含むポリアミド 6 ベースのマスターペレットとして添加される請求項 1 ~ 8 のいずれかに記載の樹脂組成物。

【請求項 1 0】 (B) 成分のポリフェニレンエーテルの分子量分布（重量平均分子量／数平均分子量）が、2. 5 以上である請求項 1 ~ 9 のいずれかに記載の樹脂組成物。

【請求項 1 1】 (B) 成分のポリフェニレンエーテルの分子量分布（重量平均分子量／数平均分子量）が、2. 5 以上のポリフェニレンエーテルと 2. 5 未満のポリフェニレンエーテルの混合物である請求項 1 ~ 1 0 のいずれかに記載の樹脂組成物。

【請求項 1 2】 請求項 1 ~ 1 1 に記載の樹脂組成物からなる射出成形体。

【請求項 1 3】 請求項 1 ~ 1 2 に記載の樹脂組成物から成形された自動車用リレーブロック材料。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明は、金型内の流動性（スパイラルフロー特性）に優れ、成形品の加熱時の後変形が少なく、加熱エージング時の引張強度の低下が大幅に抑制され、更にシワ模様の発生も抑制された熱可塑性樹脂組成物に関する。

本発明の熱可塑性樹脂組成物は、電気・電子部品、OA 部品、機械部品及び、オートバイ・自動車の電装部品内外装部品などの幅広い分野に好適に用いられ、特に自動車のエンジンルーム内に設置されるリレーブロック材料用途に好適に用いることができる。

【0 0 0 2】

【従来の技術】

ポリフェニレンエーテルとポリアミドとのポリマーアロイは特公昭 4 5 - 9 9

7号公報で提案されて以来、種々の用途に使用されており、その優れた機械的特性・熱的特性・流動特性を活かし、特に自動車用途に多く使用されている。

自動車のエンジンルーム内に設置されるリレーブロック材料には、従来、ポリアミド6, 6樹脂が使用されていたが、ポリアミド6, 6樹脂では、吸水時の寸法変化が大きくなるという問題点があり、最近では次第にポリアミド/ポリフェニレンエーテルアロイへ置き換わってきている。

例えば、特開平6-141443号公報、特開平6-136256号公報及び特開平6-184398号公報にはポリアミド、ポリフェニレンエーテル、ポリプロピレン及びモンタン酸ナトリウム等からなる組成物が、耐熱性、耐溶剤性、機械的強度、ウエルド強度、成形性、再使用性、低温衝撃性に優れ、自動車用リレーボックスに好適な熱可塑性樹脂組成物を与えるという技術が報告されている。

【0003】

しかしながら、最近では、自動車部品の大半が電子制御されるようになってきており、各電装機器を集約するリレーブロックが果たす役割は非常に大きくなっている。それにも関わらず、高密度化したエンジンルーム内では、リレーブロックに許容されるスペースはどんどん小さくなっているのが現状である。

そのため、リレーブロックの構造が複雑化し、多くの薄肉部を持つようになり、より高い流動性（メルトフローレートで表されるような溶融時の流動性ではなく、金型内で冷却される時の流動性が要求されている）と、加熱環境下での薄肉部の後変形の抑制が要求されるようになってきている。

【0004】

また、薄肉部と厚肉部が混在する設計となったリレーブロックでは、部分的にシワのような模様が発生する現象が見られるようになってきている。これらは機能的に問題はないが、外観上好ましくないため改良を求められている。

さらに、エンジンルーム内の高密度化により、空隙が減少し、冷却効率が低下し、エンジンルーム内の環境温度が上昇している。そのため、リレーブロックにはより高い耐熱エージング特性（加熱エージング時の引張強度の低下の抑制）が要求されるようになってきている。

これらの最近になり明らかになってきた課題に対しては、上述した従来の技術では充分に解決することができず、新たな技術の開発が待望されていた。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、ポリアミド／ポリフェニレンエーテルアロイの抱えるこれら問題点（金型内の流動性の不足、成形品の加熱時の後変形、シワ模様の発生及び加熱エージング時の引張強度の低下）を同時に解決しようとするものである。

【0006】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記課題を解決するため鋭意検討を重ねた結果、特定の粘度のポリアミドと、特定の粘度のポリフェニレンエーテル及びブロック共重合体を含み、ブロック共重合体の比率を限定することにより、上述した問題点が解決された熱可塑性樹脂組成物が得られることを見いだした。

すなわち本発明は、(A) JIS K6810で測定した相対粘度が3.0以下のポリアミド50～90重量部、(B)還元粘度が0.50以下のポリフェニレンエーテル50～100重量部の合計100重量部に対して、(C)少なくとも1個の芳香族ビニル化合物を主体とする重合体ブロックと、少なくとも1個の共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロックを有し数平均分子量が170,000以上である水素添加されたブロック共重合体を1～20重量部含み、更に(B)成分と(C)成分の合計量に対する(C)成分の割合が0.10以上0.30未満である事を特徴とする樹脂組成物及びそれからなるリレーブロック成形体に関する。

【0007】

次に本発明で使用するここのできる各成分について詳しく述べる。

本発明で使用するここのできる(A)成分のポリアミドの種類としては、ポリマー主鎖中にアミド結合 $\{-NH-C(=O)-\}$ を有するものであれば、いずれも使用することができる。

一般にポリアミドは、ラクタム類の開環重合、ジアミンとジカルボン酸の重縮合、アミノカルボン酸の重縮合などによって得られるが、これらに限定されるも

のではない。

【0008】

上記ジアミンとしては大別して脂肪族、脂環式および芳香族ジアミンが挙げられ、具体例としては、テトラメチレンジアミン、ヘキサメチレンジアミン、ウンデカメチレンジアミン、ドデカメチレンジアミン、トリデカメチレンジアミン、2, 2, 4-トリメチルヘキサメチレンジアミン、2, 4, 4-トリメチルヘキサメチレンジアミン、5-メチルナノメチレンジアミン、1, 3-ビスアミノメチルシクロヘキサン、1, 4-ビスアミノメチルシクロヘキサン、*m*-フェニレンジアミン、*p*-フェニレンジアミン、*m*-キシリレンジアミン、*p*-キシリレンジアミンが挙げられる。

【0009】

ジカルボン酸としては、大別して脂肪族、脂環式および芳香族ジカルボン酸が挙げられ、具体例としては、アジピン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ドデカン二酸、1, 1, 3-トリデカン二酸、1, 3-シクロヘキサンジカルボン酸、テレフタル酸、イソフタル酸、ナフタレンジカルボン酸、ダイマー酸などが挙げられる。

ラクタム類としては、具体的には ϵ カプロラクタム、エナントラクタム、 ω ラウロラクタムなどが挙げられる。

また、アミノカルボン酸としては、具体的には ϵ アミノカプロン酸、7-アミノヘプタン酸、8-アミノオクタン酸、9-アミノナノン酸、11-アミノウンデカン酸、12-アミノドデカン酸、13-アミノトリデカン酸などが挙げられる。

本発明においては、これらラクタム類、ジアミン、ジカルボン酸、 ω アミノカルボン酸は、単独あるいは二種以上の混合物にして重縮合を行って得られる共重合ポリアミド類はいずれも使用することができる。

また、これらラクタム類、ジアミン、ジカルボン酸、 ω アミノカルボン酸を重合反応機内で低分子量のオリゴマーの段階まで重合し、押出機等で高分子量化したのもも好適に使用することができる。

【0010】

特に本発明で有用に用いることのできる(A)ポリアミド樹脂としては、ポリアミド6、ポリアミド6, 6、ポリアミド4, 6、ポリアミド11, ポリアミド12, ポリアミド6, 10、ポリアミド6, 12、ポリアミド6/6, 6、ポリアミド6/6, 12、ポリアミドMXD (m-キシリレンジアミン)、6、ポリアミド6, T、ポリアミド6, I、ポリアミド6/6, T、ポリアミド6/6, I、ポリアミド6, 6/6, T、ポリアミド6, 6/6, I、ポリアミド6/6, T/6, I、ポリアミド6, 6/6, T/6, I、ポリアミド6/12/6, T、ポリアミド6, 6/12/6, T、ポリアミド6/12/6, I、ポリアミド6, 6/12/6, Iなどが挙げられ、複数のポリアミドを押出機等で共重合化したポリアミド類も使用することができる。好ましいポリアミドは、ポリアミド6、ポリアミド6, 6、ポリアミド6/6, 6及び、それらの混合物であり、最も好ましくはポリアミド6, 6又は、ポリアミド6, 6とポリアミド6の混合物である。

ポリアミド6, 6とポリアミド6の混合物を使用する際のポリアミド6の好ましい量比は、使用するすべてのポリアミドに対して15重量%未満であることが望ましい。より好ましくは10重量%未満である。ポリアミド6を少量配合することにより、成形片に発生するシワ模様を大幅に抑制することができるようになる。

【0011】

本発明で使用されるポリアミドの粘度はJIS K6810で測定した相対粘度が3.0以下である事が必須である。ポリアミドの粘度がこれを上回ると、組成物の金型内の流動性が大幅に低下し、成形品の加熱後の後変形が大きくなり、成形片にシワ模様が発生することになり好ましくない。ポリアミドのより好ましい相対粘度は2.8以下、最も好ましくは2.7以下である。下限は特に制限はないが、2.2以上であることが望ましい。

【0012】

本発明におけるポリアミドは、相対粘度の異なる複数のポリアミド樹脂の混合物であっても良い。例えば相対粘度2.2のポリアミドと相対粘度2.8のポリアミドの混合物、相対粘度2.7のポリアミドと相対粘度3.2のポリアミドの

混合物等である。相対粘度が3.0を越えるポリアミドを使用した場合においても、混合物のポリアミドの相対粘度は3.0以下である必要がある。ポリアミド混合物の相対粘度は、JIS K6810に従って実測することで容易に確認することができる。

【0013】

ポリアミドの末端基は、官能化ポリフェニレンエーテルとの反応に關与する。ポリアミド樹脂は末端基として一般にアミノ基、カルボキシル基を有しているが、一般的にカルボキシル基濃度が高くなると、一般的に耐衝撃性が低下し、流動性が向上し、逆にアミノ基濃度が高くなると耐衝撃性が向上し、流動性が低下する。

本願における、これらの好ましい比はアミノ基／カルボキシル基濃度比で、9／1～1／9であり、より好ましくは8／2～1／9、更に好ましくは6／4～1／9である。

【0014】

また、末端アミノ基の濃度として50ミリ当量／kg以下であることが好ましい。更に好ましくは40ミリ当量／kg以下であり、最も好ましくは、35ミリ当量／kg以下である。下限は特に制限はないが10ミリ当量／kg以上であることが望ましい。末端アミノ基の濃度が50ミリ当量／kgを越えると、組成物の金型内流動性の大幅な低下、成形品の加熱後の後変形の増大、成形片へのシワ模様の発生等が起こりやすくなる。

これらポリアミド樹脂の末端基の調整方法は、当業者には明らかであるような公知の方法を用いることができる。例えばポリアミド樹脂の重合時に所定の末端濃度となるようにジアミン化合物、モノアミン化合物、ジカルボン酸化合物、モノカルボン酸化合物などから選ばれる1種以上を添加する方法が挙げられる。

また、本発明においては、ポリアミド樹脂の耐熱安定性を向上させる目的で遷移金属とハロゲンを存在させても構わない。遷移金属の種類に関しては特に制限はないが、銅、セリウム、ニッケル、コバルトが好ましく、特に銅が好ましい。また、ハロゲンの中でも、臭素又はヨウ素が好ましく使用できる。

【0015】

遷移金属の好ましい量は組成物中に10ppm以上200ppm未満である。さらに好ましくは10ppm以上100ppm未満である。また、ハロゲンの好ましい量は500ppm以上1500ppm未満であり、より好ましくは、700ppm以上1200ppm未満である。

これら遷移金属とハロゲンの添加方法としては、例えば、ポリアミド／ポリフェニレンエーテルの組成物化時に粉体として添加する方法、ポリアミドの重合時に添加する方法、ポリアミドに高濃度で添加したマスターペレットを作成したのち添加する方法等が挙げられるが、いずれの方法をとっても構わない。これらの方法の中で好ましい方法は、ポリアミドの重合時に添加する方法、又はポリアミドに高濃度で添加したマスターペレットを作成したのち添加する方法であり、ポリアミドに高濃度で添加したマスターペレットを作成したのち添加する方法が最も好ましい。

【0016】

ポリアミドに高濃度で添加したマスターペレットを作成したのち添加する方法の中でも特に好ましい方法としては、遷移金属を500ppm以上、ハロゲンを15,000ppm以上含むポリアミド6ベースのマスターペレットとして添加する方法が挙げられる。この方法をとることにより、耐熱エージング時の引張強度の低下を更に抑制する事ができる。この理由は定かではないが、遷移金属やハロゲンが、結晶性の低いポリアミド6中に存在する方がイオン化しやすく、ポリアミド安定化に寄与しやすいことが要因の一つと考えられる。

【0017】

また、本発明においては、上述したものの他に、公知の有機安定剤も問題なく使用することができる。有機安定剤の例としては、イルガノックス1098等に代表されるヒンダードフェノール系酸化防止剤、イルガフォス168等に代表されるリン系加工熱安定剤、HP-136に代表されるラクトン系加工熱安定剤、イオウ系耐熱安定剤、ヒンダードアミン系光安定剤等が挙げられる。

これら有機安定剤の中でもヒンダードフェノール系酸化防止剤、リン系加工熱安定剤、もしくはその併用がより好ましい。

これら有機安定剤の好ましい配合量は、ポリアミド樹脂の100重量部に対し

て、0.001～1重量部である。

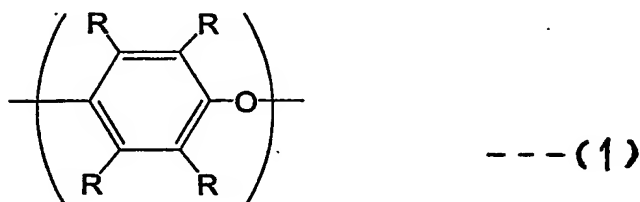
【0018】

さらに、上記の他にポリアミドに添加することが可能な公知の添加剤等もポリアミド100重量部に対して10重量部未満の量で添加してもかまわない。

本発明で利用できるポリフェニレンエーテルとは、式(1)の構造単位からなる、ホモ重合体及び／または共重合体である。

【0019】

【化1】



【0020】

〔式中、Oは酸素原子、Rは、それぞれ独立して、水素、ハロゲン、第一級もしくは第二級の低級アルキル、フェニル、ハロアルキル、アミノアルキル、炭化水素オキシ、又はハロ炭化水素オキシ（但し、少なくとも2個の炭素原子がハロゲン原子と酸素原子を隔てている）を表わす。〕

【0021】

本発明の(B)ポリフェニレンエーテルの具体的な例としては、例えば、ポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレンエーテル)、ポリ(2-メチル-6-エチル-1,4-フェニレンエーテル)、ポリ(2-メチル-6-フェニル-1,4-フェニレンエーテル)、ポリ(2,6-ジクロロ-1,4-フェニレンエーテル)等が挙げられ、さらに2,6-ジメチルフェノールと他のフェノール類との共重合体（例えば、特公昭52-17880号公報に記載されてあるような2,3,6-トリメチルフェノールとの共重合体や2-メチル-6-ブチルフェノールとの共重合体）のごときポリフェニレンエーテル共重合体も挙げられる。

【0022】

これらの中でも特に好ましいポリフェニレンエーテルとしては、ポリ(2,6

ージメチルー1, 4-フェニレンエーテル)、2, 6-ジメチルフェノールと2, 3, 6-トリメチルフェノールとの共重合体、またはこれらの混合物である。

本発明で用いる(B)ポリフェニレンエーテルの製造方法は公知の方法で得られるものであれば特に限定されるものではなく、例えば、米国特許第3306874号明細書、同第3306875号明細書、同第3257357号明細書及び同第3257358号明細書、特開昭50-51197号公報、特公昭52-17880号公報及び同63-152628号公報等に記載された製造方法等が挙げられる。

【0023】

本発明で使用するのことができるポリフェニレンエーテルの還元粘度($\eta_{sp/c}$: 0.5 g/dl、クロロホルム溶液、30℃測定)は、0.50 dl/g以下であることが必須である。好ましくは、0.48 dl/g以下、さらに好ましくは0.45 dl/g以下である。下限は特に制限はないが、0.30 dl/g以上であることが望ましい。

本発明においては、2種以上の還元粘度の異なるポリフェニレンエーテルをブレンドしたものであっても、混合物の還元粘度が0.5 dl/g以下であれば何ら問題なく使用することができる。混合物の還元粘度は、その混合物を0.5 g/dlの濃度のクロロホルム溶液とし、30℃測定で測定することにより容易に測定可能である。

【0024】

本発明において使用するのことができるポリフェニレンエーテルは、分子量分布(重量平均分子量/数平均分子量)が、2.5以上のものを使用することが望ましい。分子量分布の上限としては3.5未満が好ましい。分子量分布が2.5以上のポリフェニレンエーテルを用いることにより、金型内の流動性を更に向上させることが可能となる。

また、分子量分布(重量平均分子量/数平均分子量)が、2.5以上3.5未満のポリフェニレンエーテルと2.5未満1.5以上のポリフェニレンエーテルの混合物を用いることも、好ましく使用することができる。混合物を用いることで、金型内の流動性と併せて、シワ模様の発生の抑制効果も発現させることがで

きる。

【 0 0 2 5 】

本発明でいう分子量分布とは、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー測定装置を用いて、紫外分光検出器で測定し、標準ポリスチレンで換算した数平均分子量と重量平均分子量の比（重量平均分子量／数平均分子量）で表す。

また、本発明に使用できるポリフェニレンエーテルは、重合溶媒に起因する有機溶剤が、ポリフェニレンエーテル 1 0 . 0 重量部に対して 5 重量％未満の量で残存していても構わない。これら重合溶媒に起因する有機溶剤は、重合後の乾燥工程で完全に除去するのは困難であり、通常数百 p p m から数％の範囲で残存しているものである。ここでいう重合溶媒に起因する有機溶媒としては、トルエン、キシレンの各異性体、エチルベンゼン、炭素数 1 ～ 5 アルコール類、クロロホルム、ジクロルメタン、クロルベンゼン、ジクロルベンゼン等の 1 種以上が挙げられる。

【 0 0 2 6 】

また、本発明で使用できるポリフェニレンエーテルは、全部又は一部が変性されたポリフェニレンエーテルであっても構わない。

ここでいう変性されたポリフェニレンエーテルとは、分子構造内に少なくとも 1 個の炭素－炭素二重結合または、三重結合及び少なくとも 1 個のカルボン酸基、酸無水物基、アミノ基、水酸基、又はグリシジル基を有する、少なくとも 1 種の変性化合物で変性されたポリフェニレンエーテルを指す。

【 0 0 2 7 】

該変性されたポリフェニレンエーテルの製法としては、（１）ラジカル開始剤の存在下、不存在下で 1 0 0 ℃ 以上、ポリフェニレンエーテルのガラス転移温度未満の範囲の温度でポリフェニレンエーテルを溶融させることなく変性化合物と反応させる方法、（２）ラジカル開始剤の存在下、不存在下でポリフェニレンエーテルのガラス転移温度以上 3 6 0 ℃ 以下の範囲の温度で変性化合物と溶融混練し反応させる方法、（３）ラジカル開始剤の存在下、不存在下でポリフェニレンエーテルのガラス転移温度未満の温度で、ポリフェニレンエーテルと変性化合物を溶液中で反応させる方法等が挙げられ、これらいずれの方法でも構わないが、

(1) 及び、(2) の方法が好ましい。

【0028】

次に分子構造内に少なくとも1個の炭素-炭素二重結合または、三重結合及び少なくとも1個のカルボン酸基、酸無水物基、アミノ基、水酸基、又はグリシジル基を有する少なくとも1種の変性化合物について具体的に説明する。

分子内に炭素-炭素二重結合とカルボン酸基、酸無水物基を同時に有する変性化合物としては、マレイン酸、フマル酸、クロロマレイン酸、シス-4-シクロヘキセン-1, 2-ジカルボン酸及びこれらの酸無水物などが挙げられる。特にフマル酸、マレイン酸、無水マレイン酸が良好で、フマル酸、無水マレイン酸が特に好ましい。

【0029】

また、これら不飽和ジカルボン酸のカルボキシル基の、1個または2個のカルボキシル基がエステルになっているものも使用可能である。

分子内に炭素-炭素二重結合とグリシジル基を同時に有する変性化合物としては、アリルグリシジルエーテル、グリシジルアクリレート、グリシジルメタアクリレート、エポキシ化天然油脂等が挙げられる。

これらの中でグリシジルアクリレート、グリシジルメタアクリレートが特に好ましい。

分子内に炭素-炭素二重結合と水酸基を同時に有する変性化合物としては、アリルアルコール、4-ペンテン-1-オール、1, 4-ペンタジエン-3-オールなどの一般式 $C_nH_{2n-3}OH$ (n は正の整数) の不飽和アルコール、一般式 $C_nH_{2n-5}OH$ 、 $C_nH_{2n-7}OH$ (n は正の整数) 等の不飽和アルコール等が挙げられる。

上述した変性化合物は、それぞれ単独で用いても良いし、2種以上を組み合わせ用いても良い。

【0030】

変性されたポリフェニレンエーテルを製造する際の変性化合物の添加量は、ポリフェニレンエーテル100重量部に対して0.1~10重量部が好ましく、更に好ましくは0.3~5重量部である。

ラジカル開始剤を用いて変性されたポリフェニレンエーテルを製造する際の好ましいラジカル開始剤の量は、ポリフェニレンエーテル100重量部に対して0.001～1重量部である。

【0031】

また、変性されたポリフェニレンエーテル中の変性化合物の付加率は、0.01～5重量%が好ましい。より好ましくは0.1～3重量%である。

該変性されたポリフェニレンエーテル中には、未反応の変性化合物及び／または、変性化合物の重合体が1%の量未満であれば残存していても構わない。

また、変性されたポリフェニレンエーテル中に残存する変性化合物及び／または、変性化合物の重合体の量を減少させるために、該変性されたポリフェニレンエーテルを製造する際に、必要に応じてアミド結合及び／またはアミノ基を有する化合物を添加しても構わない。

【0032】

ここでいうアミド結合を有する化合物とは、分子構造中にアミド結合 $\{-\text{NH}-\text{C}(=\text{O})-\}$ 構造を有する化合物であり、アミノ基を有する化合物とは末端に $\{-\text{NH}_2\}$ 構造を有する化合物である。これら化合物の具体例としては、オクチルアミン、ノニルアミン、テトラメチレンジアミン、ヘキサメチレンジアミン等の脂肪族アミン類、アニリン、*m*-フェニレンジアミン、*p*-フェニレンジアミン、*m*-キシリレンジアミン、*p*-キシリレンジアミン等の芳香族アミン類、上記アミン類とカルボン酸、ジカルボン酸等との反応物、 ϵ -カプロラクタム等のラクタム類及び、ポリアミド樹脂等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【0033】

これらアミド結合またはアミノ基を有する化合物を添加する際の好ましい添加量は、ポリフェニレンエーテル100重量部に対し0.001重量部以上、5重量部未満である。好ましくは0.01重量部以上、1重量部未満、より好ましくは0.01重量部以上～0.1重量部未満である。

また、本発明では、スチレン系熱可塑性樹脂をポリアミドとポリフェニレンエーテルの合計100重量部に対し、50重量部未満の量であれば配合しても構わ

ない。

【0034】

本発明でいうスチレン系熱可塑性樹脂の例としては、ホモポリスチレン、ゴム変性ポリスチレン（HIPS）、スチレン-アクリロニトリル共重合体（AS樹脂）、スチレン-ゴム質重合体-アクリロニトリル共重合体（ABS樹脂）等が挙げられる。

また、ポリフェニレンエーテルの安定化の為に公知となっている各種安定剤も好適に使用することができる。安定剤の例としては、酸化亜鉛、硫化亜鉛等の金属系安定剤、ヒンダードフェノール系安定剤、リン系安定剤、ヒンダードアミン系安定剤等の有機安定剤であり、これらの好ましい配合量は、ポリフェニレンエーテル100重量部に対して5重量部未満である。

更に、ポリフェニレンエーテルに添加することが可能な公知の添加剤等もポリフェニレンエーテル100重量部に対して10重量部未満の量で添加しても構わない。

【0035】

本発明でのポリアミドとポリフェニレンエーテルの量比は、ポリアミド50～90重量部、ポリフェニレンエーテル10～50重量部の比（両者の合計が100重量部）である。ポリフェニレンエーテルの量が50重量部を越えると、金型内の流動性が劣り好ましくない。

【0036】

次に、本発明で使用するこことのできる（C）ブロック共重合体について具体的に説明する。

本発明で使用するこことのできる（C）ブロック共重合体とは、少なくとも1個の芳香族ビニル化合物を主体とする重合体ブロックと、少なくとも1個の共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロックを有し数平均分子量が170,000以上である水素添加されたブロック共重合体である。

芳香族ビニル化合物の具体例としてはスチレン、 α メチルスチレン、ビニルトルエン等が挙げられ、これらから選ばれた1種以上の化合物が用いられるが、中でもスチレンが特に好ましい。

共役ジエン化合物の具体例としては、ブタジエン、イソプレン、ピペリレン、1, 3-ペンタジエン等が挙げられ、これらから選ばれた1種以上の化合物が用いられるが、中でもブタジエン、イソプレンおよびこれらの組み合わせが好ましい。

【0037】

ブロック共重合体の共役ジエン化合物としてブタジエンを使用する場合は、ポリブタジエンブロック部分のミクロ構造は1, 2-ビニル含量もしくは1, 2-ビニル含量と3, 4-ビニル含量の合計量が5~80%が好ましく、さらには10~50%が好ましく、15~40%が最も好ましい。

本発明におけるブロック共重合体は、芳香族ビニル化合物を主体とする重合体ブロック(a)と共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロック(b)がa-b型、a-b-a型、a-b-a-b型のから選ばれる結合形式を有するブロック共重合体である事が好ましい。

【0038】

これらの中でもa-b-a型、a-b-a-b型がより好ましく、更にはa-b-a型が最も好ましい。これらはもちろん混合物であっても構わない。

本発明で使用する事の出来る芳香族ビニル化合物と共役ジエン化合物の水素添加されたブロック共重合体とは、上述の芳香族ビニル化合物と共役ジエン化合物のブロック共重合体を水素添加処理することにより、共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロックの脂肪族二重結合を0を越えて100%の範囲で制御したものをいう。該水素添加されたブロック共重合体の好ましい水素添加率は50%以上であり、より好ましくは80%以上、最も好ましくは95%以上である。

【0039】

本発明において、(C)成分のブロック共重合体は数平均分子量170,000以上のブロック共重合体である必要がある。

数平均分子量170,000未満のブロック共重合体を使用した場合は、本発明の効果の一つである加熱エージング時の引張強度の元となる加熱エージング前の引張強度自体が低下するため好ましくない。

本発明でいう数平均分子量とは、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー測

定装置を用いて、紫外分光検出器で測定し、標準ポリスチレンで換算した数平均分子量の事を指す。この時、重合時の触媒失活による低分子量成分が検出されることがあるが、その場合は分子量計算に低分子量成分は含めない。通常、計算された正しい分子量分布（重量平均分子量／数平均分子量）は1.0～1.1の範囲内である。

【0040】

本発明においては、(C)成分の芳香族ビニル化合物を主体とする一つの重合体ブロックの数平均分子量は、30,000以上である事が望ましい。芳香族ビニル化合物を主体とする一つの重合体ブロックの数平均分子量を30,000以上とする事により、加熱エージング後の引張強度の低下を抑制することができる。この理由としては、ブロック共重合体の芳香族ビニル化合物ブロックが、ポリフェニレンエーテルと相溶化するのに十分な分子量を持つ事により、ブロック共重合体の耐熱性が向上し、加熱劣化が抑制されたためと考えられる。

【0041】

芳香族ビニル化合物を主体とする一つの重合体ブロックの数平均分子量は、上述したブロック共重合体の数平均分子量を用いて、下式により求めることができる。

$$Mn_{(a)} = \{Mn \times a / (a + b)\} / N$$

[上式中において、 $Mn_{(a)}$ は芳香族ビニル化合物を主体とする一つの重合体ブロックの数平均分子量、 Mn はブロック共重合体の数平均分子量、 a はブロック共重合体中のすべての芳香族ビニル化合物を主体とする重合体ブロックの重量%、 b はブロック共重合体中のすべての共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロックの重量%、そして N はブロック共重合体中の芳香族ビニル化合物を主体とする重合体ブロックの数を表す。]

【0042】

本発明において、(C)成分のブロック共重合体の量はポリアミドとポリフェニレンエーテルの合計100重量部に対して1～20重量部の範囲である。

また、(C)ブロック共重合体成分は、(B)ポリフェニレンエーテル成分と(C)ブロック共重合体成分の合計量に対する(C)成分の割合が0.10以上

0.30未満である必要がある。より好ましくは0.10以上0.20未満であり、更に好ましくは0.10以上0.15未満である。

この割合が0.10未満である場合は、成形片にシワ模様が発生しやすくなり好ましくなく、0.30以上である場合は、本発明の効果の一つである加熱エージング時の引張強度の元となる加熱エージング前の引張強度自体が低下するため好ましくない。

【0043】

これら本発明中で用いることのできる芳香族ビニル化合物-共役ジエン化合物のブロック共重合体は、本発明の趣旨に反しない限り、結合形式の異なるもの、芳香族ビニル化合物種の異なるもの、共役ジエン化合物種の異なるもの、1,2-結合ビニル含有量もしくは1,2-結合ビニル含有量と3,4-結合ビニル含有量の異なるもの、芳香族ビニル化合物成分含有量の異なるもの、水素添加率の異なるもの等混合して用いても構わない。

【0044】

また、本発明で使用するブロック共重合体は、全部又は一部が変性されたブロック共重合体であっても構わない。

ここでいう変性されたブロック共重合体とは、分子構造内に少なくとも1個の炭素-炭素二重結合または、三重結合及び少なくとも1個のカルボン酸基、酸無水物基、アミノ基、水酸基、又はグリシジル基を有する、少なくとも1種の変性化合物で変性されたブロック共重合体を指す。

【0045】

該変性されたブロック共重合体の製法としては、(1)ラジカル開始剤の存在下、不存在下でブロック共重合体の軟化点温度以上250℃以下の範囲の温度で変性化合物と溶融混練し反応させる方法、(2)ラジカル開始剤の存在下、不存在下でブロック共重合体の軟化点以下の温度で、ブロック共重合体と変性化合物を溶液中で反応させる方法、(3)ラジカル開始剤の存在下、不存在下でブロック共重合体の軟化点以下の温度で、ブロック共重合体と変性化合物を溶融させることなく反応させる方法等が挙げられ、これらいずれの方法でも構わないが、(1)の方法が好ましく、更には(1)の中でもラジカル開始剤存在下で行う方法

が最も好ましい。

【0046】

ここでいう分子構造内に少なくとも1個の炭素-炭素二重結合または、三重結合及び少なくとも1個のカルボン酸基、酸無水物基、アミノ基、水酸基、又はグリシジル基を有する少なくとも1種の変性化合物とは、変性されたポリフェニレンエーテルで述べた変性化合物と同じものが使用できる。

また、本発明のブロック共重合体中には、パラフィンを主成分とするオイルをあらかじめ混合したものを用いても構わない。パラフィンを主成分とするオイルをあらかじめ混合する事により、金型内での流動性の向上、成形品の加熱時の後変形の抑制、シワ模様の発生の抑制といった効果をより高めることができる。

【0047】

この際の好ましいパラフィンを主成分とするオイルの量は(C)成分のブロック共重合体100重量部に対して、70重量部未満である。より好ましくは60重量部未満である。

ここでいうパラフィンを主成分とするオイルとは、芳香環含有化合物、ナフテン環含有化合物及び、パラフィン系化合物の三者が組み合わさった重量平均分子量500~10000の範囲の炭化水素系化合物の混合物であり、パラフィン系化合物の含有量が50重量%以上のものである。

【0048】

より好ましくは、パラフィン系化合物が50~90重量%、ナフテン環含有化合物が10~40重量%、芳香環含有化合物が5重量%以下のものである。

これら、パラフィンを主成分とするオイルは市販されており、例えば出光興産(株)製のPW380等が挙げられる。

また、本発明では、組成物の製造の際に相溶化剤を添加しても構わない。相溶化剤を使用する主な目的は、ポリアミド-ポリフェニレンエーテル混合物の物理的性質を改良することである。本発明で使用する相溶化剤とは、ポリフェニレンエーテル、ポリアミドまたはこれら両者と相互作用する多官能性の化合物を指すものである。この相互作用は化学的(たとえばグラフト化)であっても、または物理的(たとえば分散相の表面特性の変化)であってもよい。

【0049】

いずれにしても得られるポリアミド-ポリフェニレンエーテル混合物は改良された相溶性を示す。

本発明において使用することのできる相溶化剤の例としては、特開平8-8869号公報及び特開平9-124926号公報等に詳細に記載されており、これら公知の相溶化剤はすべて使用可能であり、併用使用も可能である。

これら、種々の相溶化剤の中でも、特に好適な相溶化剤の例としては、マレイン酸、無水マレイン酸、クエン酸が挙げられる。

本発明における相溶化剤の好ましい量は、ポリアミドとポリフェニレンエーテルの混合物100重量部に対して0.01~20重量部であり、より好ましくは0.1~10重量部である。

【0050】

本発明では、上記した成分のほかに、本成分の効果を損なわない範囲で必要に応じて付加的成分を添加しても構わない。

付加的成分の例としては、ポリエステル、ポリオレフィン等の熱可塑性樹脂、無機充填材（タルク、カオリン、ソノトライト、ワラストナイト、酸化チタン、チタン酸カリウム、炭素繊維、ガラス繊維など）、無機充填材と樹脂との親和性を高める為の公知のシランカップリング剤、難燃剤（ハロゲン化された樹脂、シリコーン系難燃剤、水酸化マグネシウム、水酸化アルミニウム、有機リン酸エステル化合物、ポリリン酸アンモニウム、ポリリン酸メラミン、赤燐など）、滴下防止効果を示すフッ素系ポリマー、可塑剤（オイル、低分子量ポリオレフィン、ポリエチレングリコール、脂肪酸エステル類等）及び、三酸化アンチモン等の難燃助剤、カーボンブラック等の着色剤、カーボンファイバー、導電性カーボンブラック及びカーボンフィブリル等の導電性付与材、帯電防止剤、各種過酸化物質、酸化防止剤、紫外線吸収剤、光安定剤等である。

【0051】

これらの成分の具体的な添加量は、（A）～（C）成分の合計量100重量部に対して、合計で100重量部を越えない範囲である。

本発明の組成物を得るための具体的な加工機械としては、例えば、単軸押出機

、二軸押出機、ロール、ニーダー、ブラベンダープラストグラフ、バンパリーミキサー等が挙げられるが、中でも二軸押出機が好ましく、特に、上流側供給口と1カ所以上の下流側供給口を備えた二軸押出機が最も好ましい。

【0052】

この際の溶融混練温度は特に限定されるものではないが、混練状態等を考慮して通常240～360℃の中から好適な組成物が得られる条件を任意に選ぶことができる。

【0053】

本発明の具体的な製造方法は、上流側供給口と1カ所以上の下流側供給口を備えた二軸押出機を用い、(1)上流側供給口よりブロック共重合体、及びポリフェニレンエーテルを供給し溶融混練した後、下流側供給口よりポリアミドを供給し溶融混練する方法、(2)上流側供給口よりブロック共重合体の一部、及びポリフェニレンエーテルを供給し溶融混練した後、下流側供給口よりポリアミド及び残りのブロック共重合体を溶融混練する方法、(3)上流側供給口よりポリフェニレンエーテルを供給し溶融混練した後、下流側供給口よりブロック共重合体及びポリアミドを供給し溶融混練する方法等が挙げられるが、いずれの方法を用いても構わない。

【0054】

このようにして得られる本発明の組成物は、従来より公知の種々の方法、例えば、射出成形により各種部品の成形体として成形できる。

これら各種部品としては、例えばリレーブロック材料等に代表されるオートバイ・自動車の電装部品、ICトレイ材料、各種ディスクプレーヤー等のシャーシ、キャビネット等の電気・電子部品、各種コンピューターおよびその周辺機器等のOA部品や機械部品、さらにはオートバイのカウルや、自動車のバンパー・フェンダー・ドアパネル・各種モール・エンブレム・アウタードアハンドル・ドアミラーハウジング・ホイールキャップ・ルーフレール及びそのステイ材・スポイラー等に代表される外装品や、インストゥルメントパネル、コンソールボックス、トリム等に代表される内装部品等に好適に使用できる。

【0055】

本発明の樹脂組成物は、これら用途の中で、特にリレーブロック材料用途に最適である。

以下、本発明を実施例及び比較例により、更に詳細に説明する。

【0056】

【発明の実施の形態】

(使用した原料)

成分(A) ポリ(2, 6-ジメチル-1, 4-フェニレンエーテル)

PPE-L

還元粘度 = 0.42 dl/g

分子量分布(重量平均分子量/数平均分子量) = 2.1

PPE-H

還元粘度 = 0.52 dl/g

分子量分布 = 2.2

PPE-W

還元粘度 = 0.50 dl/g

分子量分布 = 2.9

【0057】

成分(B) ポリアミド

PA-1

ポリアミド 6, 6

相対粘度 = 2.85

末端アミノ基濃度 = 45 ミリ等量/kg

末端カルボキシル基濃度 = 75 ミリ等量/kg

銅元素を 100 ppm, ヨウ素を 3000 ppm 含む。

PA-2

ポリアミド 6, 6

相対粘度 = 2.60

末端アミノ基濃度 = 30 ミリ等量/kg

末端カルボキシル基濃度 = 110 ミリ等量/kg

PA-3

ポリアミド6, 6

相対粘度=3.23

末端アミノ基濃度=52ミリ等量/kg

末端カルボキシル基濃度=60ミリ等量/kg

銅元素を70ppm, ヨウ素を2400ppm含む。

【0058】

PA-MB

ポリアミド6

相対粘度=2.60

末端アミノ基濃度=50ミリ当量/kg

末端カルボキシル基濃度=65ミリ当量/kg

銅元素を900ppm, ヨウ素を18000ppm含むマスターペレット

【0059】

成分(C) ブロック共重合体

SEBS-1

構造: ポリスチレン-水素添加ポリブタジエン-ポリスチレン

数平均分子量=246,000

ポリスチレンブロック1個あたりの数平均分子量=40,600

スチレン成分合計含有量=33%

1,2-ビニル含有量=33%

ポリブタジエン部の水素添加率=98%以上

SEBS-2

構造: ポリスチレン-水素添加ポリブタジエン-ポリスチレン

数平均分子量=76,000

ポリスチレンブロック1個あたりの数平均分子量=11,000

スチレン成分合計含有量=29%

1,2-ビニル含有量=32%

ポリブタジエン部の水素添加率=98%以上

SEBS-3

構造：ポリスチレン-水素添加ポリブタジエン-ポリスチレン

数平均分子量=170,000

ポリスチレンブロック1個あたりの数平均分子量=29,800

スチレン成分合計含有量=35%

1,2-ビニル含有量=38%

ポリブタジエン部の水素添加率=98%以上

パラフィン系オイルを35重量%含有

【0060】

ポリフェニレンエーテルの分子量分布とブロック共重合体の数平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー測定装置 [GPC SYSTEM 21: 昭和電工 (株) 製] を用いて、紫外分光検出器 [UV-41: 昭和電工 (株) 製] で測定し標準ポリスチレンで換算し算出した。[溶媒: クロロホルム、温度: 40℃、カラム: サンプル側 (K-G, K-800RL, K-800R)、リファレンス側 (K-805L×2本)、流量10ml/分、検出波長: 254nm, 圧力15~17kg/cm²]

【0061】

実施例及び比較例で行った各評価試験は、以下のようにして行った。

(1) スパイラルフロー流動長 (金型内の流動距離)

射出成形機 (IS-100GN: 東芝機械製) を用い、シリンダー温度を280℃に設定し、80℃に温度調節したスパイラルフロー用金型を用いて評価した。スパイラルフロー用金型は、金型中心部よりらせん状に流動する様に設計された金型で、らせん状流路の幅は4mm、厚みは3mmであった。

【0062】

また、スパイラルフロー流動長は金型温度により大きく影響を受けるため、金型温度条件を統一するため、射出時間10秒、冷却時間15秒、インターバル1秒、金型開閉に要する時間4秒の合計30秒/1ショットの成形サイクルに固定し、50ショット成形した内の、最後の10ショットの流動距離の加算平均値を、金型内での流動距離として算出した。

【0063】

(2) 成形品の加熱時の後変形量

射出成形機 (IS-80EPN) を用いて、図1に示したリレーブロックを成形した。(シリンダー温度設定: 280℃, 金型温度: 80℃, 射出時間: 15秒, 冷却時間: 20秒, 射出圧力: 成形片にヒケがなくなった圧力の1.1倍, 射出速度: 60%)

成形したリレーブロックを23℃, 50%RH環境下に24時間静置したのち、120℃に設定したオープン中に30分間入れ、取り出した後、更に23℃, 50%RH環境下に24時間静置した。

【0064】

その後、本来直線であるはずの、図1のA-B部分に発生した反りの大きさを測定し、成形品の加熱時の後変形量として評価した。

【0065】

(3) シワ模様の発生数

成形片の変形量を測定するために成形したリレーブロックの外観を観察し、シワ模様の有無を確認した。シワ模様が確認されたものに関してはその個数も計測した。

【0066】

(4) 加熱エージング後の引張強度保持率

射出成形機 (IS-80EPN) を用いてASTM D-638に準拠した引張試験用の成形片を成形した。(シリンダー温度設定: 280℃, 金型温度: 80℃, 射出時間: 15秒, 冷却時間: 20秒, 射出圧力: 成形片にヒケがなくなった圧力の1.1倍)

得られた成形片を、150℃、2000時間の加熱エージングを実施した後、試験片を取り出し、アルミ防湿袋中で室温23℃の雰囲気下で48時間放置した。その試験片をASTM D-638に準拠し、引張試験を実施した。加熱エージングなしの組成物からの引張強度を元に加熱エージング後の引張強度の保持率を下式により求めた。”

【0067】

なお、誤差を少なくするため加熱エージング後の引張強度測定は、 n 数 12 点で実施し、最大値と最小値を除いた 10 点の平均を元に保持率を計算した。ただし、加熱エージング前のそれは、 n 数 5 点の平均値である。

$$\text{引張強度保持率} = [(TS-A) / (TS-B)] \times 100$$

[上式中、 $TS-A$ は加熱エージング後の引張強度、 $TS-B$ は加熱エージング前の引張強度を示す。]

【0068】

【実施例 1～4 及び比較例 1～3】

上流側に 1 カ所と、押出機中央部に 1 カ所の供給口を有する二軸押出機 [ZSK-40: ウェルナー&フライデラー社製 (ドイツ)] のシリンダー温度を上流側供給口 (以下メイン-F と略記) より押出機中央部供給口 (以下サイド-F と略記) までを 320℃、サイド-F からダイまでを 280℃ に設定した。

表 1 記載の割合に従い、メイン-F より PPE、SEBS、及び相溶化剤として 0.2 重量部の無水マレイン酸 (以下、単に MAH と略記) をそれぞれ均一混合したものを供給し、サイド-F より表 1 記載の割合の量の PA を供給し、溶融混練してペレットを得た。

【0069】

なお、このときのスクリュウ回転数は 300 回転/分とし、吐出量は 80 kg/h であった。また、サイド-F のあるバレルの直前のバレルと、ダイ直前のバレルにそれぞれ開口部を設け、真空吸引することにより残存揮発分及び残存オリゴマーの除去を行った。この時の真空度は -700 mmHg であった。

ここで得られたそれぞれの条件のペレットを用いて、各種測定用の試料とした。

【0070】

【表1】

| 単位 | 実施例1 | 実施例2 | 実施例3 | 実施例4 | 比較例1 | 比較例2 | 比較例3 |
|-----------------|------|------|------|-------|------|------|------|
| PPE-L | 30 | | 15 | 30 | | 25 | 55 |
| PPE-H | | | | | 30 | | |
| PPE-W | | 30 | 15 | | | | |
| SEBS-1 | 10 | 10 | 10 | | 10 | 15 | 5 |
| SEBS-2 | | | | 10 | | | |
| SEBS-3 | 0.2 | 0.2 | 0.2 | 0.2 | 0.2 | 0.2 | 0.2 |
| MAH | 60 | | | | | 60 | 40 |
| PA-1 | | 55 | 55 | 55 | | | |
| PA-2 | | | | | 60 | | |
| PA-3 | | 5 | 5 | 5 | | | |
| PA-MB | | | | | | 0.38 | 0.08 |
| SEBS/(SEBS+PPE) | 0.25 | 0.25 | 0.25 | 0.18 | 0.25 | 0.38 | 0.08 |
| スライドル流動長 | 88 | 92 | 90 | 93 | 57 | 92 | 37 |
| 成形品の加熱時の後変形 | 0.3 | 0.4 | 0.4 | 0.1以下 | 1.0 | 1.3 | 1.5 |
| シワ模様の発生数 | 4 | 2 | なし | なし | 15 | 8 | 多数 |
| 加熱エージング前の引張強度 | 61 | 62 | 61 | 60 | 60 | 51 | 69 |
| 加熱エージング後の引張強度 | 49 | 53 | 54 | 55 | 47 | 40 | 28 |
| 引張強度保持率 | 80 | 85 | 89 | 92 | 78 | 78 | 41 |

【発明の効果】

本発明の組成物及び本発明の組成物からなるリレーブロックは、従来技術と比較し、金型内の流動性の不足、成形品の加熱時の後変形、シワ模様の発生及び加熱エージング時の引張強度の低下といった問題点を同時に解決することができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

実施例で成形したリレーブロックの外観図である。

【符号の説明】

符号 1 : フューズソケット部

符号 2 : リレーソケット部

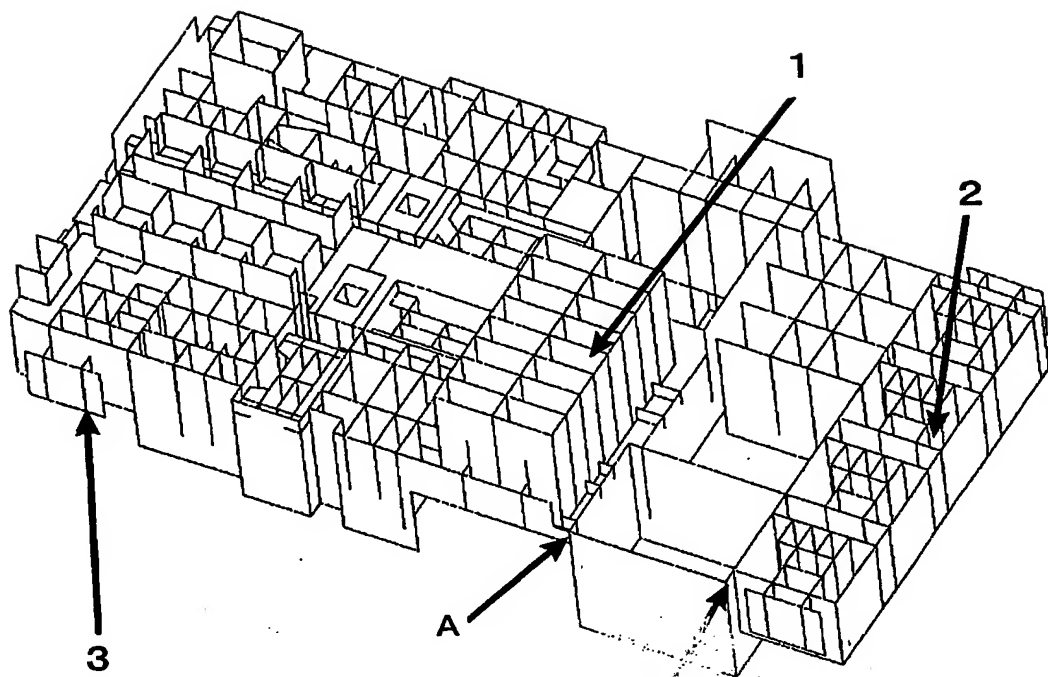
符号 3 : 車体への取り付け部

符号 A, 符号 B : 実施例において成形品の加熱時の後変形量の測定に際し、この A と B からなる直線部分の変形量を使用した。

【書類名】

図面

【図1】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 金型内における流動性の不足、成形後の変形、シワ模様の発生、及び加熱エージング時の引張強度の低下が大幅に抑制された樹脂組成物と、それからなるリレーブロックの提供。

【解決手段】 特定粘度のポリアミド、特定粘度のポリフェニレンエーテルおよび170,000以上の数平均分子量を持つブロック共重合体からなる組成物において、ブロック共重合体とポリフェニレンエーテルの合計量に対するブロック共重合体の比を特定範囲の比とする。

【選択図】 選択図なし。

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[000000033]

| | |
|----------|--------------------|
| 1. 変更年月日 | 2001年 1月 4日 |
| [変更理由] | 名称変更 |
| 住 所 | 大阪府大阪市北区堂島浜1丁目2番6号 |
| 氏 名 | 旭化成株式会社 |

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☒ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER: _____**

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.